

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-221216

(43)Date of publication of application : 05.08.2003

(51)Int.CI.

C01B 31/02

(21)Application number : 2002-294824

(71)Applicant : MITSUBISHI CHEMICALS CORP

(22)Date of filing : 08.10.2002

(72)Inventor : TAKEHARA HIROAKI  
YAMAMOTO TAKAHARU  
KATSUKI MASAJI

(30)Priority

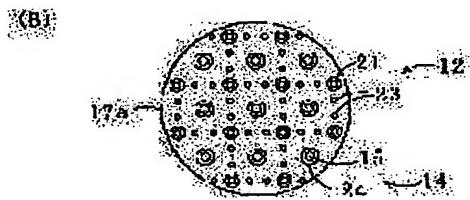
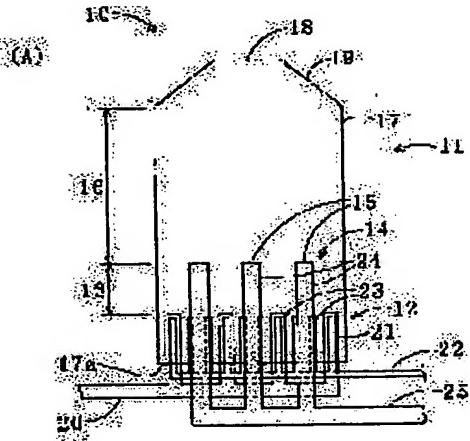
Priority number : 2001357008 Priority date : 22.11.2001 Priority country : JP

## (54) METHOD AND APPARATUS FOR MANUFACTURING FULLERENES

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a method and an apparatus for manufacturing fullerenes economically on a large scale in a mass production.

**SOLUTION:** In an apparatus 10 for manufacturing fullerenes which apparatus has the first reaction zone 13 that forms a high temperature combustion gas flow by supplying an oxygen-containing gas and a fuel gas via the first burner 12 into a reaction furnace 11 and burning them, and the second reaction zone 16 that is situated in the downstream side of the first reaction zone 13, has discharge spouts 15 of the second burner 14 for supplying the raw material hydrocarbons into the combustion gas flow and produces fullerenes by reacting the raw material hydrocarbons supplied in a gasified state in the combustion gas flow, the apparatus is characterized in that the discharge spouts 15 of the second burner 14 are formed in the upstream side of the second reaction zone 16 in great numbers and with clearances therebetween and dispersively discharge the raw material hydrocarbons into the combustion gas flow.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号  
特開2003-221216  
(P2003-221216A)

(43)公開日 平成15年8月5日(2003.8.5)

(51)Int.Cl.  
C 01 B 31/02

識別記号  
101

F I  
C 01 B 31/02

マーク(参考)  
101 F 4 G 14 6

(21)出願番号 特願2002-294824(P2002-294824)  
(22)出願日 平成14年10月8日(2002.10.8)  
(31)優先権主張番号 特願2001-357008(P2001-357008)  
(32)優先日 平成13年11月22日(2001.11.22)  
(33)優先権主張国 日本(JP)

(71)出願人 000005968  
三菱化学株式会社  
東京都千代田区丸の内二丁目5番2号  
(72)発明者 武原 弘明  
福岡県北九州市八幡西区黒崎城石1番1号  
三菱化学株式会社内  
(72)発明者 山本 隆晴  
福岡県北九州市八幡西区黒崎城石1番1号  
三菱化学株式会社内  
(74)代理人 100090697  
弁理士 中前 富士男

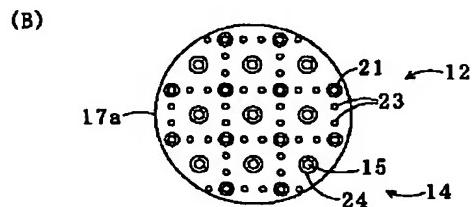
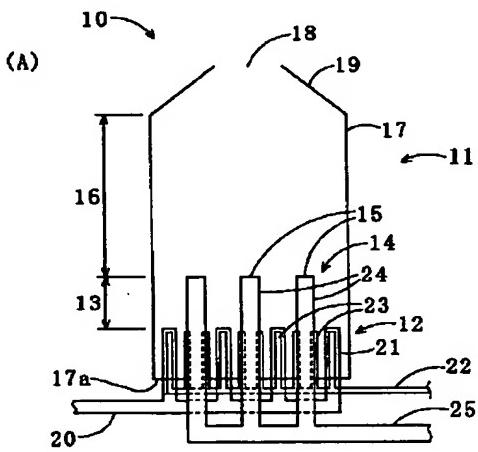
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 フラーレン類の製造方法及びその装置

(57)【要約】

【課題】 経済的かつ大量生産可能なフラーレン類の製造方法及びその装置を提供する。

【解決手段】 反応炉11内に、第1のバーナー12を介して酸素含有ガスと燃料ガスとを供給し、燃焼させて高温の燃焼ガス流を形成させる第1反応帯域13と、第1反応帯域13の下流側にあって、燃焼ガス流に原料炭化水素を供給する第2のバーナー14の吐出口15を有し、ガス化して供給された原料炭化水素を燃焼ガス流中で反応させてフラーレン類を生成させる第2反応帯域16を有するフラーレン類の製造装置10において、第2のバーナー14の吐出口15は、第2反応帯域16の上流側に隙間を有して多数形成され、原料炭化水素を燃焼ガス流中に分散放送出する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 反応炉内に、酸素含有ガスと燃料とを供給して燃焼させて高温の燃焼ガス流を形成させる第1反応帯域と、この燃焼ガス流の途中に原料炭化水素を供給する原料炭化水素供給口を有し且つ該原料炭化水素を反応させてフラーレン類を生成させる第2反応帯域を有することを特徴とするフラーレン類の製造装置を使用し、前記第2反応帯域の圧力を大気圧未満とすることを特徴とするフラーレン類の製造方法。

【請求項2】 請求項1に記載のフラーレン類の製造方法において、前記第2反応帯域が前記第1反応帯域の下流側にあることを特徴とするフラーレン類の製造方法。

【請求項3】 請求項1及び2のいずれか1項に記載のフラーレン類の製造方法において、前記第2反応帯域の温度が1000°C以上であることを特徴とするフラーレン類の製造方法。

【請求項4】 反応炉内に、第1のバーナーを介して酸素含有ガスと燃料ガスとを供給し、これらを燃焼させて高温の燃焼ガス流を形成させる第1反応帯域と、該第1反応帯域の下流側にあって、前記燃焼ガス流に原料炭化水素を供給する第2のバーナーの吐出口を有し、ガス化して供給された前記原料炭化水素を前記燃焼ガス流中で反応させてフラーレン類を生成させる第2反応帯域を有することを特徴とするフラーレン類の製造装置。

【請求項5】 請求項4記載のフラーレン類の製造装置において、前記第2のバーナーの吐出口は、前記第2反応帯域の上流側に隙間を有して多数形成され、前記原料炭化水素を前記燃焼ガス流中に分散放出することを特徴とするフラーレン類の製造装置。

【請求項6】 請求項5記載のフラーレン類の製造装置において、前記第2のバーナーは、前記第1反応帯域を貫通して配置される多数の小径吐出管からなっていることを特徴とするフラーレン類の製造装置。

【請求項7】 請求項4～6のいずれか1項に記載のフラーレン類の製造装置において、前記第1のバーナーは、前記酸素含有ガスと前記燃料ガスとをそれぞれ独立に放出する複数の酸素含有ガスノズル及び燃料ガスノズルが混在配置されていることを特徴とするフラーレン類の製造装置。

【請求項8】 請求項4～6のいずれか1項に記載のフラーレン類の製造装置において、前記第1のバーナーのヘッドは多孔質部材からなって、表面から前記酸素含有ガスと前記燃料ガスが混合された状態で噴出されることを特徴とするフラーレン類の製造装置。

【請求項9】 請求項8記載のフラーレン類の製造装置において、前記酸素含有ガスと前記燃料ガスの混合は前記第1のバーナー内で行われ、前記第1のバーナーには前記酸素含有ガスと前記燃料ガスが独立に別配管で供給されていることを特徴とするフラーレン類の製造装置。

【請求項10】 請求項8記載のフラーレン類の製造装

10

20

30

40

50

置において、前記酸素含有ガスと前記燃料ガスとは予混合されて前記ヘッドの下部に設けられた蓄圧室に供給されていることを特徴とするフラーレン類の製造装置。

【請求項11】 請求項4～6のいずれか1項に記載のフラーレン類の製造装置において、前記第1のバーナーは、多数の小径の噴出ノズルが隙間を有して形成されたヘッダー管を有し、該ヘッダー管には予混合された前記酸素含有ガスと前記燃料ガスが供給されていることを特徴とするフラーレン類の製造装置。

【請求項12】 請求項4～6のいずれか1項に記載のフラーレン類の製造装置において、前記第1のバーナーは、前記酸素含有ガスを噴出する多数の小径の噴出ノズルが隙間を有して形成された第1のヘッダー管と、前記第1のヘッダー管とは隙間を有して配置され前記燃料ガスを噴出する多数の小径の噴出ノズルが隙間を有して形成された第2のヘッダー管を有し、前記第1のヘッダー管及び前記第2のヘッダー管には前記酸素含有ガス及び前記燃料ガスがそれぞれ独立に別配管で供給されていることを特徴とするフラーレン類の製造装置。

【請求項13】 請求項4～12のいずれか1項に記載のフラーレン類の製造装置において、前記第2のバーナーから供給される原料炭化水素に酸素含有ガスを混合することを特徴とするフラーレン類の製造装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、フラーレン類の製造方法及びその装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】フラーレン類（以下、単にフラーレンということもある）は、ダイヤモンド、黒鉛に次ぐ第三の炭素同素体の総称であり、C<sub>60</sub>、C<sub>70</sub>等に代表されるように5員環と6員環のネットワークで閉じた中空殻状の炭素分子である。フラーレンの存在が最終的に確認されたのは比較的最近の1990年のことであり、比較的新しい炭素材料であるが、その特殊な分子構造ゆえに特異的な物理的性質を示すことが認められ、例えば、以下のような広範囲な分野に渡り、革新的な用途開発が急速に展開されつつある。

（1）超硬材料への応用：フラーレンを前駆体として微細結晶粒子をもつ人工ダイヤモンドの精製が可能ため、付加価値のある耐摩耗材料への利用が期待されている。

（2）医薬品への応用：C<sub>60</sub>誘導体、光デバイスを用いることで抗癌剤、エイズ・骨粗鬆症・アルツハイマー治療薬、造影剤、ステント材料等の用途としての研究が進められている。

（3）超伝導材料への応用：フラーレン薄膜に金属カリウムをドープすると18Kという高い転移温度を持つ超伝導材料をつくり出すことができる事が発見され、多方面から注目を集めている。

(4) 半導体製造への応用：レジストにC<sub>60</sub>を混ぜることでレジスト構造がより一層強化されることを利用し、次世代半導体製造への応用が期待されている。

【0003】各種炭素数のフラー<sup>レ</sup>ンの中でもC<sub>60</sub>及びC<sub>70</sub>は比較的合成が容易であり、それゆえ今後の需要も爆発的に高まることが予想されている。現在知られているフラー<sup>レ</sup>ンの製造方法としては、以下に示す方法が挙げられる。

#### (1) レーザ蒸着法

希ガス中に置かれた炭素ターゲットに高エネルギー密度のパルスレーザーを照射し、炭素原子の蒸発により合成する方法である。希ガスが流れる石英管を電気炉の中に置き、グラファイト試料をその石英管の中に置く。ガスの流れの上流側からグラファイト試料にレーザーを照射し、蒸発させると電気炉出口付近の冷えた石英管の内壁にC<sub>60</sub>やC<sub>70</sub>などのフラー<sup>レ</sup>ンを含む煤が付着する。レーザーのショット当たりの蒸発量がわずかであり、大量製造には不向きである。

#### (2) 抵抗加熱法

ヘリウムガスで満たされた減圧下の容器の中でグラファイト棒を通電加熱し昇華させる方法である。回路での電気抵抗ロスが大きいので大量製造に不向きである。

#### 【0004】(3) アーク放電法

数十kPa中のヘリウムガス中で2本のグラファイト電極を軽く接触させたり、あるいは1~2mm程度離した状態でアーカ放電を起こし、陽極の炭素を昇華させる方法である。現在工場規模でのフラー<sup>レ</sup>ンの大量製造に用いられている。

#### (4) 高周波誘導加熱法

抵抗加熱やアーカ放電を使う代りに、高周波誘導により原料グラファイトに渦電流を流し、原料グラファイトを加熱して蒸発させる方法である。

#### (5) 燃焼法

ヘリウム等の不活性ガスと酸素との混合ガス中でベンゼン等の炭化水素原料を不完全燃焼させる方法である。ベンゼン燃料の数%が煤となり、その10%程度がフラー<sup>レ</sup>ンとなる点で製造効率はよくないが、副製する煤(フラー<sup>レ</sup>ン等)を液体燃料等に使用可能な点、製造装置が単純である点で、アーカ放電法に対抗する大量生産法として注目されている。

#### (6) ナフタレン熱分解法

ナフタレンを約1000°Cで熱分解させる方法である。【0005】このように今までにさまざまなフラー<sup>レ</sup>ンの合成法が提案されているが、いずれの方法によてもこれまでにフラー<sup>レ</sup>ンを安価に大量に製造する方法は確立されていない。これらの方法のうち、最も安価で、効率的な製造方法の一つと考えられるのは燃焼法であり、例えば、特許文献1には、炭素含有物を火炎中で燃焼させ凝縮物を収集することによるフラー<sup>レ</sup>ンの製造方法が記載されている。この方法は、炭素含有物を火炎中

10

20

30

40

50

で燃焼させることによりフラー<sup>レ</sup>ンを製造する方法であり、実質的に燃焼のための燃料とフラー<sup>レ</sup>ンの原料は同一の炭素含有物である。フラー<sup>レ</sup>ンは煤状物質中に含まれて生成されるが、この煤状物質の一部はいわゆるカーボンブラックである。

【0006】カーボンブラックの製造方法としては、ファーネス法、チャンネル法、サーマル法、アセチレン法などが知られており、工業的に一般的な製造方法としてはファーネス法が挙げられる。この方法は、例えば円筒状のカーボンブラック製造装置(反応炉)を使用し、当該反応炉の第1反応帯域に炉軸に対して水平方向又は垂直方向に空気などの酸素含有ガスと燃料を供給し且つ燃焼させ、得られた燃焼ガス流を炉軸方向の下流に設置され縮小した断面積を持つ第2反応帯域に移動させ、当該ガス流中に原料炭化水素(原料油)を供給し反応させてカーボンブラックを生成させ、更に、その下流にある第3反応帯域でガス流に冷却水の噴霧などでガスを急冷して反応を停止させる方法である。

#### 【0007】

【特許文献1】特表平6-507879号公報

#### 【0008】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記の通常のカーボンブラックの製造方法では、フラー<sup>レ</sup>ンはほとんど生成しない。フラー<sup>レ</sup>ンの製造においては、得られる煤状物質中に含まれるフラー<sup>レ</sup>ンの割合をいかに高めるかが大きな課題となっている。一般的に、フラー<sup>レ</sup>ンの製造は、減圧下で行われ、反応領域中に希釈剤を導入する場合もある。これらの減圧度、希釈剤濃度は上記フラー<sup>レ</sup>ンの収率に影響を及ぼすことが知られている。

【0009】上記、特許文献1にはフラー<sup>レ</sup>ンの収率を向上させるために、火炎温度を上昇させること、またその手段として外部エネルギー源から火炎にさらにエネルギーを供給する方法が述べられている。好ましいエネルギー源としては、火炎を直接加熱する電気抵抗加熱、マイクロウェーブ加熱、放電加熱、及び高温ガスとの熱交換で火炎を加熱する向流加熱が挙げられている。

【0010】上記、特許文献1では、燃焼反応のための酸化剤として純酸素が、また希釈剤としてはアルゴンが用いられている。これは、フラー<sup>レ</sup>ンの収率を上げる効果があると考えられる。しかしながら、純酸素は専用のポンベもしくは供給設備等を要し、特に、工業規模でフラー<sup>レ</sup>ンを製造しようとする場合には、燃焼のために必要とする酸素の量も大量になり、特別な酸素供給設備が必要で、結果としてフラー<sup>レ</sup>ンの製造コストも高価となる。

【0011】そこで、燃焼法において製造コストを低減するために、燃焼の酸化剤として空気を用いることは容易に類推できるが、純酸素に比べて酸素濃度が低いために火炎が安定しないことや窒素の割合が多いため燃焼温

度が低くなること、特に減圧下での操作時に体積が増えノズルを通過する速度が速くなる等の理由により実用化には至っていない。フラー・レンは次世代を担う新材料、新素材として多方面から注目されており、フラー・レンを大量に且つ安価に、そして容易に製造する技術の開発が望まれている。

【0012】本発明は前述したような事情に鑑みてなされたものであり、フラー・レンを大量に且つ安価に、そして容易に製造するフラー・レン類の製造方法及びその装置を提供することを目的とする。

【0013】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、フラー・レンを大量に且つ安価に製造できる最適な燃焼方法及び製造装置を種々検討した結果、反応炉内に、酸素含有ガスと燃料とを供給し且つ燃焼させて高温の燃焼ガス流を形成させる第一反応帯域と、燃焼ガス流に原料炭化水素を供給する原料炭化水素供給口を有し且つ原料炭化水素を反応させてフラー・レンを生成させる第2反応帯域を有するフラー・レン類の製造装置を用いて、第2反応帯域の圧力を大気圧未満に保つことでフラー・レンを大量に安定的に生成できるとの知見を得た。

【0014】即ち、前記目的に沿う第1の発明に係るフラー・レン類の製造方法は、反応炉内に、酸素含有ガスと燃料とを供給して燃焼させて高温の燃焼ガス流を形成させる第1反応帯域と、この燃焼ガス流の途中に原料炭化水素を供給する原料炭化水素供給口を有し且つ該原料炭化水素を反応させてフラー・レン類を生成させる第2反応帯域を有することを特徴とするフラー・レン類の製造装置を使用し、前記第2反応帯域の圧力を大気圧未満とする。第1反応帯域に燃料と酸素含有ガスを供給して燃焼させてるので、例えば完全燃焼を容易に達成することができ、高温の燃焼ガス流を形成することができる。そして、得られた高温のガス流中に原料炭化水素を供給することにより、原料炭化水素を容易に熱分解させることができ、フラー・レン類の生成効率を向上させることができる。また、第2反応帯域内の圧力を大気圧未満にして、原料炭化水素と燃焼ガスの混合状態を希薄にすることにより、原料炭化水素の熱分解が均一に進行して、フラー・レン類の生成効率を向上させることができる。

【0015】第1の発明に係るフラー・レン類の製造方法において、前記第2反応帯域が前記第1反応帯域の下流側にあることが好ましい。第2反応帯域を第1反応帯域の下流側に設けることにより、第1反応帯域で形成された高温の燃焼ガスを直ちに第2反応帯域に導入することができる。その結果、第2反応帯域の温度を高温にすることができる。第1の発明に係るフラー・レン類の製造方法において、前記第2反応帯域の温度が1000°C以上であることが好ましい。第2反応帯域の温度を1000°C以上にすることにより、供給された原料炭化水素を短時間に確実に熱分解させることができる。

【0016】前記目的に沿う第2の発明に係るフラー・レン類の製造装置は、反応炉内に、第1のバーナーを介して酸素含有ガスと燃料ガスとを供給し、これらを燃焼させて高温の燃焼ガス流を形成させる第1反応帯域と、該第1反応帯域の下流側にあって、前記燃焼ガス流に原料炭化水素を供給する第2のバーナーの吐出口を有し、ガス化して供給された前記原料炭化水素を前記燃焼ガス流中で反応させてフラー・レン類を生成させる第2反応帯域を有する。燃料の燃焼は第1反応帯域で行なうので、燃焼状態の制御が容易となり、高温の燃焼ガスを容易に形成することができる。得られた高温の燃焼ガス流を第2反応帯域に導入し、この高温のガス流中に原料炭化水素を供給して熱分解させるので、高温の燃焼ガス流の温度、流速、流量等のガス流条件と原料炭化水素の供給条件を調整することにより、原料炭化水素の熱分解の制御が容易となる。

【0017】第2の発明に係るフラー・レン類の製造装置において、前記第2のバーナーの吐出口は、前記第2反応帯域の上流側に隙間を有して多数形成され、前記原料炭化水素を前記燃焼ガス流中に分散放出することが好ましい。原料炭化水素を供給する第2のバーナーの吐出口を第2反応帯域の上流側に形成することにより、第1反応帯域から流入する高温の燃焼ガス流中に直接原料炭化水素を供給することができ、原料炭化水素を容易に熱分解させることができる。また、原料炭化水素を多数の吐出口から燃焼ガス中に分散放出するので、燃焼ガス中で原料炭化水素を短時間に均一に熱分解することができる。第2の発明に係るフラー・レン類の製造装置において、前記第2のバーナーは、前記第1反応帯域を貫通して配置される多数の小径吐出管からなっていることが好ましい。多数の小径吐出管で原料炭化水素が供給されるため、第2反応帯域の高温の燃焼ガス流中に原料炭化水素を一様に分散放出することができる。また、小径吐出管は第1反応帯域を貫通して配置されているので、原料炭化水素は小径吐出管内を通過しながら高温の燃焼ガスにより徐々に加熱されて、第2反応帯域の高温の燃焼ガス流中の熱分解を促進することができる。

【0018】第2の発明に係るフラー・レン類の製造装置において、前記第1のバーナーは、前記酸素含有ガスと前記燃料ガスとをそれぞれ独立に放出する複数の酸素含有ガスノズル及び燃料ガスノズルが混在配置されていてよい。このような構成とすることにより、供給された酸素含有ガスと燃料ガスは拡散混合して一様な混合状態となって第1反応帯域に存在させることができる。また、第2の発明に係るフラー・レン類の製造装置において、前記第1のバーナーのヘッドは多孔質部材からなって、表面から前記酸素含有ガスと前記燃料ガスが混合された状態で噴出される構成とすることができます。このような構成とすることにより、酸素含有ガスと燃料ガスを予混合された状態で第1反応帯域に供給することができ

る。

【0019】第2の発明に係るフーラレン類の製造装置において、前記酸素含有ガスと前記燃料ガスの混合は前記第1のバーナー内で行われ、前記第1のバーナーには前記酸素含有ガスと前記燃料ガスが独立に別配管で供給される構成とすることができます。酸素含有ガスと燃料ガスの混合が第1のバーナー内で行われるので、酸素含有ガスと燃料ガスとの予混合手段を別個に設ける必要がなく、フーラレン類の製造装置の構成が簡単となる。第2の発明に係るフーラレン類の製造装置において、前記酸素含有ガスと前記燃料ガスとは予混合されて前記ヘッドの下部に設けられた蓄圧室に供給される構成とすることができます。酸素含有ガスと燃料ガスが予混合されてヘッドの下部の蓄圧室に供給されるので、第1のバーナーの構造を簡単にすることができます。

【0020】第2の発明に係るフーラレン類の製造装置において、前記第1のバーナーは、多数の小径の噴出ノズルが隙間をおいて形成されたヘッダー管を有し、該ヘッダー管には予混合された前記酸素含有ガスと前記燃料ガスが供給される構成とすることができます。このような構成とすることにより、酸素含有ガスと燃料ガスを予混合された状態で第1反応帯域に分散放出することができる。第2の発明に係るフーラレン類の製造装置において、前記第1のバーナーは、前記酸素含有ガスを噴出する多数の小径の噴出ノズルが隙間をおいて形成された第1のヘッダー管と、前記第1のヘッダー管とは隙間に有し配置され前記燃料ガスを噴出する多数の小径の噴出ノズルが隙間をおいて形成された第2のヘッダー管を有し、前記第1のヘッダー管及び前記第2のヘッダー管には前記酸素含有ガス及び前記燃料ガスがそれぞれ独立に別配管で供給される構成とすることができます。このような構成とすることにより、分散放出された酸素含有ガスと燃料ガスは拡散混合して一様な混合状態となって第1反応帯域に存在させることができる。

【0021】第2の発明に係るフーラレン類の製造装置において、前記第2のバーナーから供給される原料炭化水素に酸素含有ガスを混合することができます。原料炭化水素の熱分解は吸熱反応のため、原料炭化水素の熱分解により燃焼ガスの温度は低下する。このため、原料炭化水素に酸素含有ガスを混合することにより第2反応帯域で原料炭化水素の一部を燃焼させて熱エネルギーを発生させ、原料炭化水素が熱分解する際に消費した熱エネルギーを補填して燃焼ガスの温度が低下するのを防止できる。

#### 【0022】

【発明の実施の形態】統いて、添付した図面を参照しつつ、本発明を具体化した実施の形態につき説明し、本発明の理解に供する。ここに、図1(A)、(B)はそれぞれ本発明の第1の実施の形態に係るフーラレン類の製造方法を適用したフーラレン製造装置の説明図、平断面

図、図2(A)、(B)はそれぞれ本発明の第2の実施の形態に係るフーラレン類の製造装置の説明図、平断面図、図3(A)、(B)はそれぞれ本発明の第3の実施の形態に係るフーラレン類の製造装置の説明図、平断面図、図4は本発明の第4の実施の形態に係るフーラレン類の製造装置の部分説明図、図5(A)、(B)はそれぞれ本発明の第5の実施の形態に係るフーラレン類の製造装置の説明図、平断面図、図6(A)、(B)はそれぞれ本発明の第6の実施の形態に係るフーラレン類の製造装置の説明図、平断面図である。

【0023】本発明の第1の実施の形態に係るフーラレン類の製造方法について、図1を用いて説明する。第1の実施の形態に係るフーラレン類の製造方法は、反応炉3a内に第1反応帯域1及び第2反応帯域2を設けて構成されるフーラレン類の製造装置3に、原料炭化水素を導入し、燃焼することによりフーラレンを製造する方法に関するものである。

【0024】フーラレン類の製造装置3は、燃焼ガス流を形成させる第1反応帯域1、そこで形成された燃焼ガス流に原料炭化水素を供給し、反応させてフーラレンを生成させる第2反応帯域2を有する。第2反応帯域2は、第1反応帯域1とほぼ同じ領域（外側もしくは内側）であってもよく、また第1反応帯域1で形成された燃焼ガス流方向（以下、「軸方向」ということがある。）の下流側にあってもよい。

【0025】図1は、第2反応帯域2が第1反応帯域1の下流にある場合を示している。

【第1反応帯域について】第1反応帯域1では、一般に燃料供給口及び酸素含有ガス供給口からそれ燃料及び酸素含有ガスを供給し、燃焼させることで高温の燃焼ガス流を第2反応帯域2、すなわち反応炉3aの下流に向かって発生させる。

【0026】燃料及び酸素含有ガスの供給は、反応炉3a内に入る前に混合する、いわゆる予混合方式であっても、それぞれ独立したノズルから反応炉3aに供給する、いわゆる拡散混合方式であってもよい。拡散混合方式の場合は、図1において、例えば、中央の燃料供給口7から燃料を供給し、その周囲の酸素含有ガス供給口5、6から酸素含有ガスを供給する。また、予混合方式と拡散混合方式を組み合わせてもよく、例えば、図1において、酸素含有ガス供給口5からは、燃料と酸素含有ガスをあらかじめ混合させたものを供給し、酸素含有ガス供給口6からは酸素含有ガスを、燃料供給口7からは燃料をそれぞれ独立に供給してもよい。

【0027】この第1反応帯域1は、高温の燃焼ガスを発生させることができて、その燃焼方法は予混合燃焼、拡散燃焼、層流燃焼、乱流燃焼、高温空気燃焼等、公知のいかなる燃焼方法であってもよい。また、第2反応帯域2でフーラレンの生成が可能となる温度が得られれば、第1反応帯域1での燃焼は完全燃焼であっても、

不完全燃焼であってもよいが、燃料使用量に対する発熱量が大きい完全燃焼であることが好ましい。第1反応帯域1がいわゆる燃料過剰の不完全燃焼である場合は、第1反応帯域1でもフラー・レンを含む煤状物質が生成することがある。

【0028】しかし、好ましくはこの第1反応帯域1における燃焼は、燃焼に必要な酸素が、量論酸素量以上である、希薄混合気での燃焼の方がよい。酸素含有ガスとしては空気、酸素ガス又はこれらにアルゴンガス、窒素ガス等の不燃性ガスを任意の割合で混合したガスを使用することができる。特に高温燃焼におけるNO<sub>x</sub>の発生を抑えるためには、純酸素を使用してもよい。フラー・レンの収率を上げるために、燃焼過程において希ガス等を用いて希釈することが好ましい。希ガスは、供給用の専用ノズルから供給してもよいし、燃料、原料炭化水素、酸素含有ガス中にあらかじめ混合させておいてもよい。

【0029】燃料としては、水素、一酸化炭素、天然ガス、石油ガス等の燃料ガス、重油、ベンゼン、トルエンなどの石油系液体燃料、クレオソート油等の石炭系液体燃料を使用することができる。中でも、本実施の形態で使用する燃料としては燃料ガスが好ましい。また、フラー・レン製造時の第1反応帯域1における平均温度は、得ようとする目的のフラー・レンによって適宜調整すればよいが、好ましくは1300°C以上、更に好ましくは1600°C以上とされる。これは、燃焼ガスの温度が高温である程、フラー・レン類の生産性が上がるからである。上限はあまり高すぎてもフラー・レン類の生産性が落ちる場合がある。また、反応炉の材質による耐熱性の問題を考慮の上決定すればよい。

【0030】燃料供給口7、酸素含有ガス供給口5、6の配置は、反応炉3aに開口していれば任意である。図1においては、燃料供給口7、酸素含有ガス供給口5、6は、反応炉3aの同一側に開口している。反応炉3a内に開口している各供給口5、6、7の形状は任意であり、略円形、楕円形、三角・四角状などの多角形状やひょうたん型などの不定形であってもよい。

【0031】反応炉3a内圧力は大気圧未満であることが好ましく、より好ましい範囲は10~300 torrである。

【第2反応帯域について】第2反応帯域2では第1反応帯域1で形成された燃焼ガス流に原料炭化水素を原料炭化水素供給口4から供給し、この原料炭化水素を一部部分燃焼させることによってフラー・レン類を生成させる。部分燃焼させるために、酸素が残存するように第1反応帯域1における燃焼を酸素過剰としてもよい。また、第2反応領域2にノズルを配置し、酸素含有ガス供給ノズルから酸素含有ガスを供給してもよい。

【0032】この際、燃焼ガス中に供給される上記原料炭化水素や酸素含有ガスは、極力均一に反応炉3a内に

供給されることが好ましい。このため、第2反応帯域2に設置する原料炭化水素供給口4、及び酸素含有ガス供給ノズルの本数は多いほどよく、また反応炉3a内に均等に配置されることが望ましい。

【0033】第2反応帯域の長さは、反応炉3aの大きさ、製造するフラー・レンの種類などによって適宜選択すればよい。第2反応帯域の位置及び形状は、任意であり、第1反応帯域の内側であっても、外側であってもよく、図1に示すように、第1反応帯域1の下流側にあってもよい。第2反応帯域の形状も任意であるが、第2反応帯域の断面形状は変化しないほうが好ましい。その理由は、フラー・レン類が生成する過程で第2反応帯域の断面形状が変化することによる流れの乱れの影響を受けると、生成するフラー・レン類に好ましくない影響を与えるからである。

【0034】第2反応帯域2の平均温度は、製造するフラー・レンによって適宜選択すればよいが、原料炭化水素が均一に気化、反応するために充分高温雰囲気であることが好ましい。具体的には1000°C以上であることが好ましく、中でも1000~1900°C、特に1700~1900°Cであることが好ましい。また、第2反応帯域2においては、燃焼ガス中の酸素濃度をできるだけ抑制することが好ましい。燃焼ガス中に酸素が多量に存在すると、フラー・レン類の生成反応帯域すなわち第2反応帯域2での原料炭化水素の一部燃焼が活発に起こり、そのため、第2反応帯域2での温度の不均一が生じることがあるからである。燃焼ガス中の酸素濃度は、好ましくは3volum-%以下、更に好ましくは0.05~1volum-%である。

【0035】本実施の形態においては、原料炭化水素を供給する位置は任意であり、反応炉の形状に合わせて原料炭化水素供給口を設けることができる。例えば、反応炉3aの径が最大となっている部分に原料炭化水素供給口を設けてもよく、また、径が縮小している縮小部に原料炭化水素供給口を設けてもよい。更に、図1に示すように、反応炉3aの径が最大となっている部分と径が縮小している縮小部にそれぞれ原料炭化水素供給口4を設けてもよい。原料炭化水素供給口4の位置によって、原料炭化水素が導入される位置でのガスの流速、乱流の強さなどを制御できる。

【0036】原料炭化水素としては、従来公知の任意のものを使用することができ、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン、ナフタレン、アントラセン等の芳香族系炭化水素、クレオソート油、カルボン酸油などの石炭系炭化水素、エチレンヘビーエンドオイル、FCCオイル(流動接触分解残渣油)等の石油系重質油、アセチレン系不飽和炭化水素、エチレン系炭化水素、ベンタンやヘキサン等の脂肪族飽和炭化水素などが挙げられ、これらを単独又は任意の割合で混合して使用してもよい。中でも精製した芳香族系炭化水素を用いることが好ましく、

特にベンゼンやトルエン等の芳香族系炭化水素が好ましい。原料の純度は高い方が好ましく、中でも芳香族系炭化水素を用いる際には純度が100%に近いほどよい。

【0037】反応炉における原料炭化水素供給口の位置は、燃焼ガスの流れ方向の断面円周上に複数設けてもよく、更には、このような同一円周上に原料炭化水素供給口を複数有する場所を、燃焼ガスの流れ方向に多段に設けてもよい。フラーインの生成反応時間を均一にし、物性が均一なフラーインを得るために、同一円周上になるべく多くの原料炭化水素供給口を設置するのが好ましい。

【0038】また、原料炭化水素供給口4に使用するノズルの型式は適宜選択することができるが、液体の原料炭化水素を用いる場合は、より均一に微細に噴霧するために、供給された液を別の液体と共に噴射する2流体ノズル等、ノズルから噴霧された直後の原料炭化水素の初期液滴径が極力小さいものとするのが好ましい。原料炭化水素供給口4の開口径、形、炉内への突出具合、燃焼ガス流への供給角度、気液比などの原料炭化水素供給方法、流速、流量、温度などは、適宜選択すればよいが、第2反応帯域2に噴霧された原料炭化水素が蒸発する前に第2反応帯域2の炉壁に付着しないような条件で噴霧することが好ましい。そのように噴霧することにより、得られる煤状物質中の異物を低減することができる。

【0039】第1反応帯域1及び第2反応帯域2を構成する炉材としては、金属、耐火物など耐熱性を有する材質であれば任意のものが使用できる。金属を使用する場合は内部燃焼ガスの温度が金属の耐熱温度以上になるため、水冷ジャケット構造や水冷チューブを巻くなどの構造を探ることにより外部から冷却する必要がある。金属以外の材料としては、例えば、SiC、ダイヤモンド、窒化アルミ、窒化珪素、セラミックス系耐火材などがある。

【0040】第2反応帯域2より下流側以降は、フラーインを含む煤状物質（反応途中のものを含む）を含んだ燃焼ガス流を1000°C以下、好ましくは800°C以下に冷却する構造とする。具体的には、反応停止流体供給口から水などを噴霧してもよいし、水冷構造等により外部を冷却した流路を通過させることによって冷却を行なってもよい。特に、流路の径が小さい場合には、特に水冷構造としなくとも大気への自然放熱で十分に冷却されることもある。

【0041】冷却されたフラーイン類及び煤状物質は、流路の先に設けられている捕集バグフィルター等（図示せず）でガスと分離されて回収される。フラーイン類の採取方法は、このようなバグフィルターや流路内壁に付着させる等、公知の一般的プロセスを使用することができる。

【0042】図2に示すように、本発明の第2の実施の形態に係るフラーイン類の製造装置10は、反応炉11

内に第1のバーナー12を介して供給された酸素含有ガスと燃料ガスが燃焼して高温の燃焼ガス流を形成する第1反応帯域13と、第1反応帯域13の下流側にあって、燃焼ガス流に原料炭化水素を供給する第2のバーナー14の吐出口15を有し、ガス化して供給された原料炭化水素を燃焼ガス流中で反応させてフラーイン類を生成させる第2反応帯域16を有する。以下、これらについて詳細に説明する。反応炉11は、例えば、円筒形状の側壁部17と、側壁部17の一端側に接続して徐々に外径が縮小して排出口18を形成している端部壁19とを備えている。側壁部17と端部壁19は、例えばステンレス鋼等の耐熱鋼で構成されている。更に、側壁部17の他端側の内周面には図示しない耐火物がライニングされている。耐火物としては、例えばアルミナ質の耐火煉瓦やアルミナ質の不定形耐火物を使用することができる。また、排出口18には図示しない排気管の一端側が接続され、排気管の他端側は排気ポンプに接続されている。このため、反応炉11内を大気圧未満の減圧状態にすると共に、反応炉11内で生成した煤状物質を含む燃焼ガスを反応炉11内から外部に排出することができる。

【0043】側壁部17の他端側の基盤17aに取付けられた第1のバーナー12は、酸素含有ガス供給配管20に接続した複数の酸素含有ガスノズル21と、燃料ガス供給配管22に接続した燃料ガスノズル23を有し、これらの各ガスノズル21、23は基盤17aに混在配置されている。また、酸素含有ガスノズル21、燃料ガスノズル23は、例えばステンレス鋼等の耐熱鋼で形成されている。このため、酸素含有ガスノズル21から供給された酸素含有ガスと、燃料ガスノズル23から供給された燃料ガスとは、放出された後に拡散混合して一様な混合状態となって第1反応帯域13で燃焼する。そして、形成された高温の燃焼ガス流は下流側の第2反応帯域16に流入する。側壁部17の他端側に取付けられた第2のバーナー14は、第1反応帯域13を貫通して配置された多数の小径吐出管24（例えば、ステンレス鋼等の耐熱鋼で形成されている）からなっている。その結果、小径吐出管24の先端側に設けられた吐出口15は、第2反応帯域16の上流側に隙間を有して配置されている。また、各小径吐出管24の基端側は原料炭化水素供給配管25に接続している。このため、第1反応帯域13から流入する高温の燃焼ガス流中に直接原料炭化水素を均一に供給することができ、原料炭化水素を短時間に均一に熱分解することができる。

【0044】次に、本発明の第2の実施の形態に係るフラーイン類の製造装置10を使用したフラーイン類の製造方法について詳細に説明する。酸素含有ガスノズル21から酸素含有ガスを、燃料ガスノズル23から燃料ガスを供給し、これらを燃焼させることで高温の燃焼ガス流を形成し、反応炉11の下流に向かって流通させる。

酸素含有ガスとしては、酸素源である酸素ガスにアルゴンガス等の不活性ガスを任意の割合で混合したガス（例えば、不活性ガスの濃度を0、又は0を超えて90モル%以下の範囲で調整できる）を使用することができる。酸素源としては、フラーレンの収率という観点からは酸素ガスが好ましく、酸素源の入手のし易さ等の観点からは空気が好ましい。特に燃焼温度を上げるために、これらの酸素含有ガスは反応炉11内に供給される前に予熱することが好ましい。予熱の方法としては、熱交換器を使用した燃焼ガスとの熱交換、いわゆるリジェネレーションバーナ等、公知のいかなる方法を用いても良い。この予熱の温度は常温以上であればいかなる温度でも良いが、フラーレンの収率を上げるために極力高温度の方が好ましい。より好ましくは、燃焼ガスの自己着火温度以上であることが好ましい。

【0045】燃料ガスとしては、一酸化炭素、天然ガス、石油ガス等の燃料ガス、重油などの石油系液体燃料をガス化したもの、クレオソート油などの石炭系液体燃料をガス化したものを使用することができる。中でも天然ガス、石油ガス等の燃料ガスが好ましい。またフラーレンの収率を上げるために、燃料ガスも不活性ガス等を用いて希釈することが好ましい。

【0046】続いて、燃料ガスが酸素含有ガスの下で燃焼して形成する燃焼ガス流について説明する。燃料ガスが完全燃焼する条件で燃料ガスノズル23から供給する燃料ガスの量と酸素含有ガスノズル21から供給する酸素ガス量を調整して第1反応帯域13に供給すると共に、排出口18に接続された図示しない排出管を介して排気ポンプで反応炉11内を大気圧未満、より好ましくは10～300torrの状態に保持して、図示しない着火手段で燃料ガスの燃焼を開始する。ここで、燃料ガスと酸素含有ガスは各々独立し距離を隔て分散配置された酸素含有ガスノズル21、燃料ガスノズル23から第1反応帯域13内に放出されるため、第1反応帯域13における燃焼状態を均一にすることができる。また、酸素含有ガス中の酸素ガス濃度はアルゴンガス等の不活性ガスにより希釈されて低下していることに加えて、反応炉11内の圧力が大気圧未満となっているため、第1反応帯域13での燃焼状態を高温空気燃焼状態と類似した状態にすることができる。その結果、燃料ガスの燃焼が均一に進行して、第1反応帯域13の温度を均一かつ高温（例えば、1000～1900°C、好ましくは1700～1900°C）にすることができます。

【0047】第2反応帯域16には、第1反応帯域13で形成された高温の燃焼ガスが流入するため、第2反応帯域16の上流側の温度は、例えば、1000～1900°Cの高温になる。原料炭化水素は、第1反応帯域13を貫通して配置された多数の小径吐出管24の各吐出口15から、第2反応帯域16の上流側の燃焼ガス流中に分散放出される。ここで、小径吐出管24は第1反応帯

域13を貫通して配置されているため、原料炭化水素は小径吐出管24内を通過中に予熱されているため、吐出口15から高温の燃焼ガス流中に放出されると直ちに熱分解する。その結果、反応活性の高い熱分解生成物が燃焼ガス中に存在し、これらが合体することによりフラーレン前駆体が形成される。そして、フラーレン前駆体が燃焼ガス流と共に移動しながら成長してフラーレンになる。なお、原料炭化水素の熱分解は吸熱反応であるため、燃焼ガスから熱エネルギーが奪われて燃焼ガスの温度が低下する。このため、原料炭化水素に酸素含有ガスを混合し、原料炭化水素の一部を燃焼させて熱エネルギーを供給するようにしてもよい。しかし、原料炭化水素の一部燃焼が活発に起こると第2反応帯域16内での温度の不均一が生じてフラーレンの生成効率が低下するため、燃焼ガス中の酸素濃度は、好ましくは3volum-%以下、更に好ましくは0.05～1volum-%である。

【0048】原料炭化水素としては、従来公知の任意のものを使用することができ、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン、ナフタレン、アントラセン等の芳香族系炭化水素、クレオソート油、カルボン酸油などの石炭系炭化水素、エチレンヘビーエンドオイル、FCCオイル（流動接触分解残渣油）等の石油系重質油、アセチレン系不飽和炭化水素、エチレン系炭化水素、ペンタンやヘキサン等の脂肪族系炭化水素などが挙げられ、これらを単独又は任意の割合で混合して使用してもよい。中でも精製した芳香族系炭化水素を用いることが好ましく、特にベンゼンやトルエン等の芳香族系炭化水素が好ましい。主に原料となる原料炭化水素の純度は高い方が好ましく、中でも芳香族系炭化水素を用いる際には純度が100%に近いほど良い。

【0049】図3に示すように、本発明の第3の実施の形態に係るフラーレン類の製造装置26は、酸素含有ガスと燃料ガスが予混合されて第1のバーナー27に供給されることが特徴である。そのため、構造が異なる第1のバーナー27についてのみ説明し、第2の実施の形態に係るフラーレン類の製造設備10と同一の構成要素には同一の符号を付して詳細な説明は省略する。第1のバーナー27は、例えば耐熱金属で作製されており、反応炉11の第1反応帯域13に一面側が露出しているヘッド28と、ヘッド28の下部に設けられた蓄圧室29を有している。そして、第2のバーナー14の各小径吐出管24は、相互に所定の隙間を開けて蓄圧室29の下方から蓄圧室29及びヘッド28を貫通し反応炉11内に突出している。

【0050】ここで、ヘッド28は、例えば焼結金属製の多孔質部材で構成されている。多孔質部材は、一面側から他面側に連通する連通孔を多数備えた構造となっており、ヘッド28の下部に設けられた蓄圧室29に酸素含有ガスと燃料ガスを予混合した混合ガスとして混合ガス供給配管30から供給すると、混合ガスはヘッド28

内の連通孔を介して蓄圧室29側の面から第1反応帯域13側に露出した面まで移動し、第1反応帯域13内に噴出することができる。従って、第1反応帯域13内に噴出した混合ガスを燃焼させることにより、第1反応帯域13で高温の燃焼ガスを形成することができる。そして、第1反応帯域13から流入する高温の燃焼ガス流中に、原料炭化水素供給配管25を介して供給した原料炭化水素を各小径吐出管24の吐出口15から供給して、原料炭化水素を短時間に均一に熱分解することができる。なお、本発明の第3の実施の形態に係るフーレン類の製造設備26を使用したフーレン類の製造方法は、第2の実施の形態に係るフーレン類の製造装置10を使用したフーレン類の製造方法と実質的に同じであるので詳細な説明は省略する。

【0051】本発明の第4の実施の形態に係るフーレン類の製造装置31では酸素含有ガスと燃料ガスが独立に別配管で第1のバーナー32に供給されるため、第3の実施の形態に係るフーレン類の製造装置26と第1のバーナー32の構造が異なっていることが特徴である。そのため、構造が異なる第1のバーナー32についてのみ説明し、第2の実施の形態に係るフーレン類の製造設備10と同一の構成要素には同一の符号を付して詳細な説明は省略する。すなわち、図4に示すように、第1のバーナー32は耐熱性金属で作製され、連通孔を有する焼結金属性の多孔質部材からなるヘッド33と、ヘッド33の下部に設けられた蓄圧室34と、蓄圧室34内に噴出口を有する複数のガス混合器35を有している。そして、第2のバーナー14の各小径吐出管24は、相互に所定の隙間を開けて蓄圧室34の下方から蓄圧室34及びヘッド33を貫通し反応炉11内に突出している。また、ガス混合器35としては、燃料ガスの流れで酸素含有ガスを吸引して混合するアスピレータ式の混合器を使用することができる。

【0052】このような構成とすることにより、酸素含有ガスと燃料ガスをそれぞれ独立に酸素含有ガス供給配管36及び燃料ガス供給配管37で各ガス混合器35に供給すると、酸素含有ガスと燃料ガスは混合されながらガス混合器35の噴出口から混合ガスとして蓄圧室34内に流入する。そして、蓄圧室34内に流入した混合ガスはヘッド33内の連通孔を介して蓄圧室34側の面から第1反応帯域13側に露出した面まで移動し、第1反応帯域13内に噴出することができる。従って、第1反応帯域13内に噴出した混合ガスを燃焼させることにより、第1反応帯域13で高温の燃焼ガス流を形成することができる。そして、第1反応帯域13から流入する高温の燃焼ガス流中に、原料炭化水素供給配管25を介して供給した原料炭化水素を各小径吐出管24の吐出口15から供給して、原料炭化水素を短時間に均一に熱分解することができる。

【0053】なお、本発明の第4の実施の形態に係るフ

ラーレン類の製造設備31を使用したフーレン類の製造方法は、第3の実施の形態に係るフーレン類の製造装置26を使用したフーレン類の製造方法と実質的に同じであるので詳細な説明は省略する。

【0054】図5に示すように、本発明の第5の実施の形態に係るフーレン類の製造装置38は、側壁部17の他端側の基盤17aに取付けられ、酸素含有ガスと燃料ガスが予混合された混合ガスが噴出する多数の小径の噴出ノズル39が隙間をおいて形成されているヘッダー管40を有する第1のバーナー41に供給されることが特徴である。そのため、構造が異なる第1のバーナー41についてのみ説明し、第2の実施の形態に係るフーレンの製造設備10と同一の構成要素には同一の符号を付して詳細な説明は省略する。

【0055】ヘッダー管40は、反応炉11の軸心に対して同心上にそれぞれ隙間を設けて配置された複数の環状管40aを有し、各環状管40aは混合ガス供給配管30aに接続している。そして、第2のバーナー14の各小径吐出管24は、各環状管40aの隙間を通って第1反応帯域13を貫通して配置されている。従って、酸素含有ガスと燃料ガスを予混合した混合ガスを混合ガス供給配管30aを介して各環状管40aに供給すると、混合ガスは各環状管40aのそれぞれの噴出ノズル39から第1反応帯域13内に噴出する。このため、第1反応帯域13内に噴出した混合ガスを燃焼させることにより、第1反応帯域13で高温の燃焼ガス流を形成することができる。そして、第1反応帯域13から流入する高温の燃焼ガス流中に、原料炭化水素供給配管25を介して供給した原料炭化水素を各小径吐出管24の吐出口15から供給して、原料炭化水素を短時間に均一に熱分解することができる。なお、本発明の第5の実施の形態に係るフーレン類の製造装置38を使用したフーレン類の製造方法は、第2の実施の形態に係るフーレン類の製造装置10を使用したフーレン類の製造方法と実質的に同じであるので詳細な説明は省略する。

【0056】本発明の第6の実施の形態に係るフーレン類の製造装置42は、本発明の第2の実施の形態に係るフーレン類の製造装置10と比較して、第1のバーナー43の構造が異なっていることが特徴である。そのため、構造が異なる第1のバーナー43についてのみ説明し、第2の実施の形態に係るフーレン類の製造装置10と同一の構成要素には同一の符号を付して詳細な説明は省略する。すなわち、図6に示すように、側壁部17の他端側の基盤17aに取付けられた第1のバーナー43は耐熱性金属で作製され、酸素含有ガスを噴出する多数の小径の噴出ノズル44が隙間をおいて形成された第1のヘッダー管45と、第1のヘッダー管45とは隙間を有し配置され燃料ガスを噴出する多数の小径の噴出ノズル46が隙間をおいて形成された第2のヘッダー管47を有している。更に、第1のヘッダー管45及び第

2のヘッダー管47には酸素含有ガス及び前記燃料ガスをそれぞれ独立に供給する酸素含有ガス供給配管20、燃料ガス供給配管22が接続されている。また、第2のバーナー14の各小径吐出管24は、第1のヘッダー管45と第2のヘッダー管47の隙間を通して基盤17aを貫通し反応炉11内に突出している。

【0057】このような構成とすることにより、酸素含有ガスを酸素含有ガス供給配管20を介して第1のヘッダー45に供給し噴出ノズル44から反応炉11内に噴出させることができる。また、燃料ガスを燃料ガス供給配管22を介して第2のヘッダー47に供給し噴出ノズル46から反応炉11内に噴出させることができる。各噴出ノズル44、46から噴出した酸素含有ガスと燃料ガスとは、放出された後に拡散混合して一様な混合状態となって第1反応帯域13で燃焼する。そして、形成された高温の燃焼ガスは下流側の第2反応帯域16に流入する。そして、第1反応帯域13から流入する高温の燃焼ガス流中に、原料炭化水素供給配管25を介して供給した原料炭化水素を各小径吐出管24の吐出口15から供給して、原料炭化水素を短時間に均一に熱分解することができる。なお、本発明の第6の実施の形態に係るフラーレン類の製造装置42を使用したフラーレン類の製造方法は、第2の実施の形態に係るフラーレン類の製造装置10を使用したフラーレン類の製造方法と実質的に同じであるので詳細な説明は省略する。

【0058】以上、本発明の実施の形態を説明したが、本発明は、この実施の形態に限定されるものではなく、発明の要旨を変更しない範囲での変更は可能であり、前記したそれぞれの実施の形態や変形例の一部又は全部を組み合わせて本発明のフラーレン類の製造方法及びその装置を構成する場合も本発明の権利範囲である。例えば、第5の実施の形態でヘッダー管40を反応炉11の軸心に対して同心上に配置された複数の環状管40aで構成したが、複数の直管を格子状にそれぞれ隙間を設けて並べてもよい。また、第6の実施の形態で第1のヘッダー管45と第2のヘッダー管47を反応炉11の軸心に対して同心上に隙間を設けて複数配置したが第1のヘッダー管と第2のヘッダー管を格子状にそれぞれ隙間を設けて並べてもよい。更に、第2のバーナー14の小径吐出管24をステンレス鋼等の耐熱鋼で作製し、第3及び第4の実施の形態で多孔質部材を耐熱性の焼結金属で作製したが、サーメット、セラミックスで作製することもできる。

#### 【0059】

【発明の効果】請求項1～3記載のフラーレン類の製造方法においては、反応炉内に、酸素含有ガスと燃料とを供給して燃焼させて高温の燃焼ガス流を形成させる第1反応帯域と、この燃焼ガス流の途中にガス化した原料炭化水素を供給する原料炭化水素供給口を有し且つ原料炭化水素を反応させてフラーレン類を生成させる第2反応

帯域を有することを特徴とするフラーレン類の製造装置を使用し、第2反応帯域の圧力を大気圧未満とするので、原料炭化水素の熱分解が均一に進行して、フラーレン類の生成効率を向上させることができ、フラーレン類を大量に且つ安価に、そして容易に製造することができる。

【0060】一方、上記、公知の燃焼法によるフラーレン類の製造方法においては、燃焼反応のための燃料とフラーレン生成のための原料は同一であるのが通常であり、炭化水素燃料燃焼反応に必要な燃料を任意に選定することができない。これに対し、本発明によると燃焼反応のための燃料と、フラーレン類の製造のための原料を別々に選定することができるため、特に工業規模でフラーレン類を製造する場合、原燃料の調達事情により、コストの安い原燃料を自由に選択することができる。

【0061】特に、請求項2記載のフラーレン類の製造方法においては、第2反応帯域が第1反応帯域の下流側にあるので、第2反応帯域の条件を炉内断面すべてにわたって一定に保つことができ、この帯域での条件をフラーレン類の収率が最大となるような条件に調節することによって、フラーレン類が生成する領域を最大に広げることができるため、通常の燃焼法に比べてフラーレン類の収率が高くなる。これに対して、従来の燃焼法においては主に火炎中でフラーレン類が生成するが、一般的に火炎は温度分布を持ち、火炎の特定の領域でフラーレン類が生成することが知られている。

【0062】請求項3記載のフラーレン類の製造方法においては、第2反応帯域の温度が1000°C以上であるので、供給された原料炭化水素を短時間に確実に熱分解させることができ、フラーレン類を大量に製造することができる。

【0063】請求項4～13記載のフラーレン類の製造装置においては、反応炉内に、第1のバーナーを介して酸素含有ガスと燃料ガスとを供給し、これらを燃焼させて高温の燃焼ガス流を形成させる第1反応帯域と、第1反応帯域の下流側にあって、燃焼ガス流に原料炭化水素を供給する第2のバーナーの吐出口を有し、ガス化して供給された原料炭化水素を燃焼ガス流中で反応させてフラーレン類を生成させる第2反応帯域を有するので、燃料の燃焼状態の制御、原料炭化水素の熱分解の制御が共に容易となって、フラーレン類を大量に、安価に、そして容易に製造することができる。

【0064】特に、請求項5記載のフラーレン類の製造装置においては、第2のバーナーの吐出口は、第2反応帯域の上流側に隙間を有して多数形成され、原料炭化水素を燃焼ガス流中に分散放出するので、燃焼ガス中で原料炭化水素を短時間に均一に熱分解することができ、原料炭化水素の熱分解物から生成させるフラーレン類の収率を高くすることができます。

【0065】請求項6記載のフラーレン類の製造装置に

においては、第2のバーナーは、第1反応帯域を貫通して配置される多数の小径吐出管からなっているので、第2反応帯域の高温の燃焼ガス流中に予熱された原料炭化水素を一様に分散放出して熱分解することができ、原料炭化水素の熱分解物から生成させるフラーイエン類の収率を高くすることが可能となる。

【0066】請求項7記載のフラーイエン類の製造装置においては、第1のバーナーは、酸素含有ガスと燃料ガスとを独立に放し出し混在配置された複数の酸素含有ガスノズル及び燃料ガスノズルを有するので、供給された酸素含有ガスと燃料ガスは拡散混合して一様な混合状態で第1反応帯域に存在させることができ、燃料ガスを第1反応帯域で容易に完全燃焼させることができるとなる。その結果、高温の燃焼ガス流を形成することができ、原料炭化水素の熱分解物から生成させるフラーイエン類の収率を高くすることが可能となる。

【0067】請求項8記載のフラーイエン類の製造装置においては、第1のバーナーのヘッドは多孔質部材からなって、表面から酸素含有ガスと燃料ガスが混合された状態で噴出されるので、酸素含有ガスと燃料ガスを予混合された状態で第1反応帯域に供給することができ、燃料ガスを第1反応帯域で容易に完全燃焼させることができるとなる。その結果、高温の燃焼ガス流を形成することができ、原料炭化水素の熱分解物から生成させるフラーイエン類の収率を高くすることが可能となる。

【0068】請求項9記載のフラーイエン類の製造装置においては、酸素含有ガスと燃料ガスの混合は第1のバーナー内で行われ、第1のバーナーには酸素含有ガスと燃料ガスが独立に別配管で供給されているので、酸素含有ガスと燃料ガスとの予混合手段を設ける必要がなく、フラーイエン類の製造装置の構成を簡単にすることができます。

【0069】請求項10記載のフラーイエン類の製造装置においては、酸素含有ガスと燃料ガスとは予混合されてヘッドの下部に設けられた蓄圧室に供給されているので、第1のバーナーの構造を簡単にすることができ、第1のバーナーのコストを低減させることができる。

【0070】請求項11記載のフラーイエン類の製造装置において、第1のバーナーは、多数の小径の噴出ノズルが隙間をおいて形成されたヘッダー管を有し、ヘッダー管には予混合された酸素含有ガスと燃料ガスが供給されているので、酸素含有ガスと燃料ガスを予混合された状態で第1反応帯域に分散放出することができ、燃料ガスを第1反応帯域で容易に完全燃焼させることができるとなる。その結果、高温の燃焼ガス流を形成することができ、原料炭化水素の熱分解物から生成させるフラーイエン類の収率を高くすることが可能となる。

【0071】請求項12記載のフラーイエン類の製造装置においては、第1のバーナーは、酸素含有ガスを噴出する多数の小径の噴出ノズルが隙間をおいて形成された第

1のヘッダー管と、第1のヘッダー管とは隙間を有し配置され燃料ガスを噴出する多数の小径の噴出ノズルが隙間をおいて形成された第2のヘッダー管を有し、第1のヘッダー管及び第2のヘッダー管には酸素含有ガス及び燃料ガスがそれぞれ独立に別配管で供給されているので、分散放出された酸素含有ガスと燃料ガスは拡散混合して一様な混合状態となって第1反応帯域に存在させることができ、燃料ガスを第1反応帯域で容易に完全燃焼させることができるとなる。その結果、高温の燃焼ガス流を形成することができ、原料炭化水素の熱分解物から生成させるフラーイエン類の収率を高くすることが可能となる。

【0072】請求項13記載のフラーイエン類の製造装置においては、第2のバーナーから供給される原料炭化水素に酸素含有ガスを混合するので、原料炭化水素が熱分解する際に消費した熱エネルギーを補填して燃焼ガスの温度が低下するのを防止でき、原料炭化水素の熱分解物から生成させるフラーイエン類の収率を高くすることができます。

#### 20 【図面の簡単な説明】

【図1】(A)、(B)はそれぞれ本発明の第1の実施の形態に係るフラーイエン類の製造方法を適用したフラーイエン製造装置の説明図、平断面図である。

【図2】(A)、(B)はそれぞれ本発明の第2の実施の形態に係るフラーイエン類の製造装置の説明図、平断面図である。

【図3】(A)、(B)はそれぞれ本発明の第3の実施の形態に係るフラーイエン類の製造装置の説明図、平断面図である。

【図4】本発明の第4の実施の形態に係るフラーイエン類の製造装置の部分説明図である。

【図5】(A)、(B)はそれぞれ本発明の第5の実施の形態に係るフラーイエン類の製造装置の説明図、平断面図である。

【図6】(A)、(B)はそれぞれ本発明の第6の実施の形態に係るフラーイエン類の製造装置の説明図、平断面図である。

#### 【符号の説明】

1：第1反応帯域、2：第2反応帯域、3：フラーイエン類の製造装置、3a：反応炉、4：原料炭化水素供給口、5、6：酸素含有ガス供給口、7：燃料供給口、10：フラーイエン類の製造装置、11：反応炉、12：第1のバーナー、13：第1反応帯域、14：第2のバーナー、15：吐出口、16：第2反応帯域、17：側壁部、17a：基盤、18：排出口、19：端部壁、20：酸素含有ガス供給配管、21：酸素含有ガスノズル、22：燃料ガス供給配管、23：燃料ガスノズル、24：小径吐出管、25：原料炭化水素供給配管、26：フラーイエン類の製造装置、27：第1のバーナー、28：ヘッド、29：蓄圧室、30、30a：混合ガス

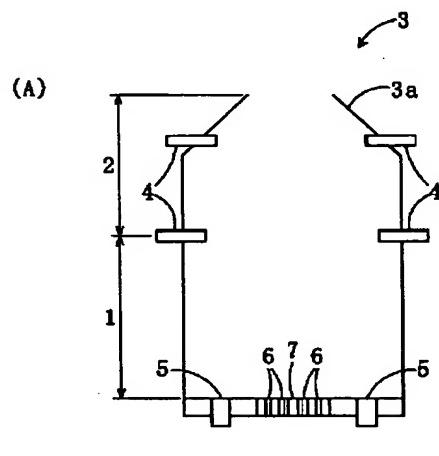
21

22

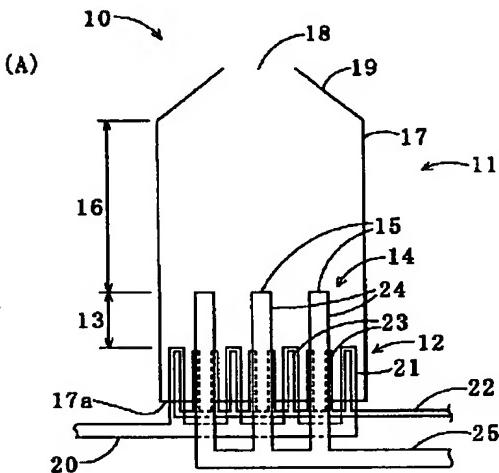
供給配管、31：フラーレン類の製造装置、32：第1のバーナー、33：ヘッド、34：蓄圧室、35：ガス混合器、36：酸素含有ガス供給配管、37：燃料ガス供給配管、38：フラーレン類の製造装置、39：噴出\*

\*ノズル、40：ヘッダー管、40a：環状管、41：第1のバーナー、42：フラーレン類の製造装置、43：第1のバーナー、44：噴出ノズル、45：第1のヘッダー管、46：噴出ノズル、47：第2のヘッダー管

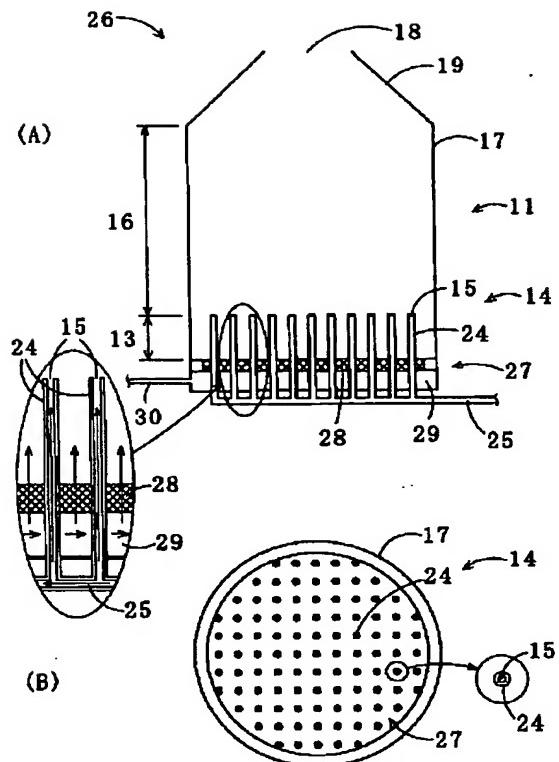
【図1】



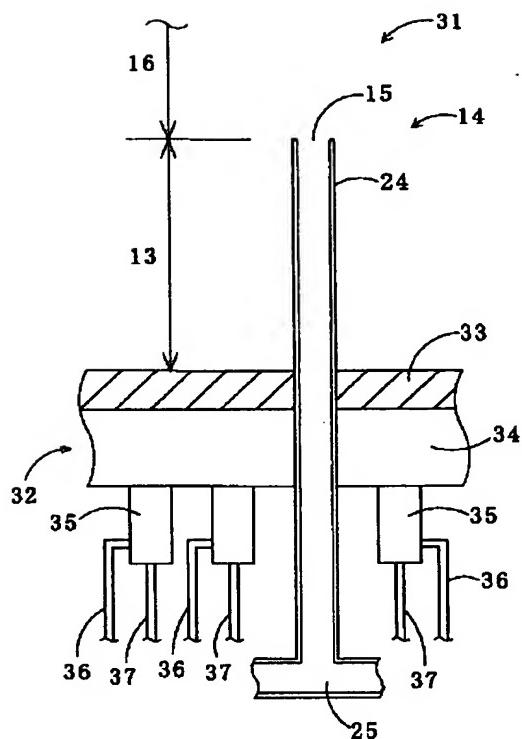
【図2】



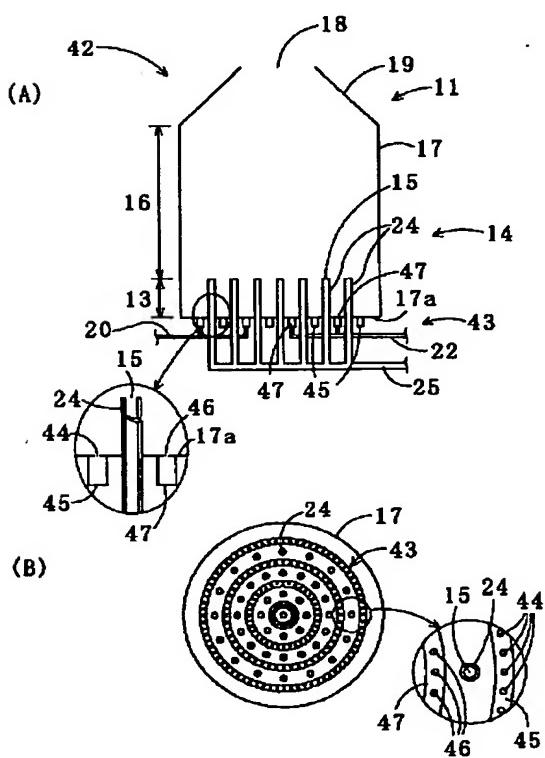
【図3】



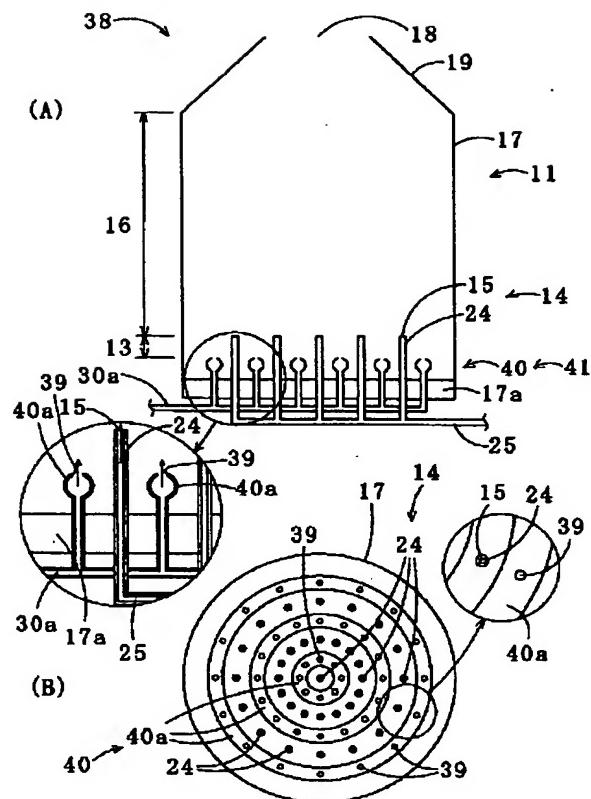
【図4】



【図6】



【図5】




---

フロントページの続き

(72)発明者 香月 正司

兵庫県西宮市清水町5-5-602

F ターム(参考) 4G146 AA07 BA12 BC03 BC07 BC08

BC27 BC34A BC34B BC35A

BC35B BC36A BC38A BC38B

DA03 DA23 DA25 DA35